

基于 D-Be 紧凑型快中子源硼中子的慢化整形研究

王佳^{1,2} 张子雄^{1,2} 李凯旋^{1,2} 潘炆烜^{1,2} 魏强林^{1,2} 刘义保^{1,2,3}

1 (东华理工大学核技术应用教育部工程研究中心 江西 南昌 330013)

2 (东华理工大学核科学与工程学院, 江西 南昌 330013)

3 (江西省核辐射探测及应用工程技术研究中心, 江西 南昌 330013)

摘要 硼中子俘获治疗是一种细胞尺度内强靶向性与高传能线密度的二元放射疗法, 具有治疗周期短、对周围健康组织损伤小等优势, 是一种具有广阔前景的癌症治疗方法。在 BNCT 装置中, 束流整形组件的作用是将中子源产生的快中子慢化至超热中子能区 ($0.5\text{ eV} < E < 10\text{ keV}$), 并保证中子方向性。本文使用蒙特卡罗模拟程序 GEANT4 以及 FLUKA 模拟 ${}^9\text{Be}(\text{d}, \text{n}){}^{10}\text{B}$ 反应中子源产生及后续中子慢化。采用 1.45 MeV 、 30 mA 的氘束轰击 $9\text{ }\mu\text{m}$ 的薄铍靶, 由该反应产生的中子作为源项, 对 BSA 进行了可行性方案设计。结果表明: 采用 45 cm 厚的 BiF_3 和 5 cm 厚的 TiF_3 组合慢化层, 12 cm 厚的 Pb 反射层, 11 cm 厚的 Al_2O_3 补充慢化层, 以及 0.1 mm 厚的 Cd 热中子吸收层, 保证出口处的 γ 成分、快中子成分、 $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{th}}$ 以及 $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$ 符合 IAEA 所推荐的建议值。本研究得出了低能氘束与薄铍靶的中子谱及 BSA 具体设计方案, 为 D-Be 中子源中子的慢化整形提供了数据参考, 为 D-Be 源进一步优化研究提供支持。

关键词 硼中子俘获治疗; 氘铍中子源; 束流整形组件; 中子慢化

中图分类号 TL99

DOI:

Design of Beam Shaping Assembly for boron neutron based on D-Be compact fast neutron source

WANG Jia^{1,2} ZHANG Zixiong^{1,2} Li Kaixuan^{1,2} PAN Yangxuan^{1,2} WEI Qianglin^{1,2} LIU Yibao^{1,2,3}

1(Engineering Research Center of Nuclear Technology Application, Ministry of Education (East China University of Technology), Nanchang, 330013)

2(School of Nuclear Science and Engineering, East China University of Technology, Nanchang, 330013)

3(Engineering Technology Research Center of Nuclear Radiation Detection and Application, Nanchang, 330013))

Abstract [Background]: Boron Neutron Capture Therapy (BNCT) is a binary radiation therapy with strong targeting and high energy transfer line density at the cellular scale. It has the advantages of short treatment cycle and minimal damage to surrounding healthy tissues, making it a promising cancer treatment method. **[Purpose]:** This study aims to design beam shaping assembly (BSA) to make the neutron beam of D-Be neutron source suitable for BNCT and ensure neutron directionality. **[Methods]:** This article uses Monte Carlo simulation programs GEANT4 and FLUKA to simulate the generation of ${}^9\text{Be}(\text{d}, \text{n}){}^{10}\text{B}$ reaction neutron sources and subsequent neutron moderation. A feasible scheme design for

教育部核技术应用教育部工程研究中心开放基金资助项目 (HJSJYB2021-9), 国家自然科学基金资助项目 (11965001), 东华理工大学博士启动基金资助项目 (DHBK2021005) 资助

第一作者: 王佳, 女, 2001 年出生, 2022 年毕业于南华大学, 现为硕士研究生, 研究领域为 BNCT 慢化体设计。

通讯作者: 刘义保, E-mail: ybliu@ecut.edu.cn

收稿日期: 20XX-00-00, 修回日期: 20XX-00-00

Supported by Fund of Engineering Research Center of Nuclear Technology Application, Ministry of Education (Grant No. HJSJYB2021-9), National Natural Science Foundation Fund (11965001), Doctoral Project of East China University of Technology (Grant No. DHBK2021005)

First author: WANG Jia, female, born in 2001, graduated from University of South China in 2022, master student, focusing on BNCT moderator design

Corresponding author: LIU Yibao, E-mail: ybliu@ecut.edu.cn

BSA was carried out using a 1.45 MeV,30 mA deuterium beam to bombard a 9 μm thin beryllium target, and set a basis BSA model with a cylindrical structure as a whole. **[Results]:** The results show that using a 45 cm thick BiF_3 and 5 cm thick TiF_3 combined slowing layer, a 12 cm thick Pb reflector layer, an 11 cm thick Al_2O_3 supplementary slowing layer, and a 0.1 mm thick Cd thermal neutron absorption layer, the outlet is ensured to γ and fast neutron composition, $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{th}}$, $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$ meets the recommended values of the IAEA. **[Conclusions]:** This study obtained the neutron spectra and BSA specific design scheme of low-energy deuterium beams and thin beryllium targets, providing data reference for the slowing shaping of neutrons in D-Be neutron sources and supporting subsequent research on D-Be sources.

Key words Boron neutron capture therapy, D-Be neutron source, Beam Shaping Assembly, Neutron moderation

中子俘获治疗 (Neutron Capture Therapy, NCT) 于 1936 年由 G.Locher 首先提出, 他指出 ^{10}B 俘获一个热中子后会产生一种高能、短射程的放射性产物, 这种产物有较强的生物效应, 因此, 中子俘获治疗法有可能作为一种新的癌症治疗方法。硼中子俘获治疗 (Boron Neutron Capture Therapy, BNCT) 具有精准肿瘤靶向性、治疗周期短、对周围健康组织损伤小等优势, 是一种具有广阔前景的癌症治疗方法。硼中子俘获治疗原理为将携带 ^{10}B 的靶向分子药物注射到人体, ^{10}B 高特异性地集聚在肿瘤组织内, 随后使用经慢化后的低能量超热中子束对肿瘤部位进行外照射, 肿瘤组织内发生 $^{10}\text{B}(\text{n}, \alpha)^7\text{Li}$ 反应, 放出 α 粒子和 ^7Li 粒子两个射程仅约 $10\mu\text{m}$ (约一个癌细胞大小)、高传能线密度的重离子, 实现在细胞水平定点击杀癌细胞, 对肿瘤周围健康组织的损伤极小^[1]。

美国的 W.Sweet 等人^[2]于 1951 年研究基于核反应堆热中子束的硼中子俘获治疗装置, 首先进行了硼中子俘获治疗临床试验, 由于当时使用的含硼药物没有较好地实现在肿瘤组织的浓聚, 试验中的患者生存期均小于一年。1958 年, Snyder 等人^[3]首次合成了硼苯丙氨酸 (BPA)。日本 Mishima 等人^[4]于 1987 年使用 BPA 作为硼化合物将 BNCT 应用于恶性黑色素瘤, 在临床上实现了 BNCT 在中枢神经系统以外的肿瘤治疗中的应用。20 世纪 70 年代至今, 第三代硼药的研究层出不穷, 包括含硼小分子、含硼生物大分子和含硼纳米药物等, 在临床前研究中也取得了许多积极结果。2020 年 3 月, 世界上第一台加速器 BNCT 设备和全球首个硼药物在日本获批。同年 5 月, 日本宣布 BNCT 疗法正式接受患者, 硼中子俘获疗法在世界上首次正式进入临床应用。

国内对 BNCT 技术及其发展极为重视。中国原子能科学研究院周永茂院士于 2009 年在北京主持建造一座基于微堆的医院中子照射器, 是世界首座专为 BNCT 提供中子源的核装置。2014 年 9

月该装置实施了我国首例黑色素瘤患者的 BNCT 临床试治, 获得了良好的治疗效果^[5]。中硼医疗联合厦门弘爱医院共同打造的加速器 BNCT 肿瘤治疗中心已于 2021 年 8 月完成安装并成功打靶出束, 并于当月开启全性能测试和动物实验, 全力推动临床进程。2024 年 4 月睿斯科医疗与晋江市展开合作, 开展科洽会展示了最新研发出有自主知识产权的基于加速器的硼中子俘获治疗 (accelerator-based Boron Neutron Capture Therapy, AB-BNCT) 核系统及精准放射治疗系统等创新技术, 加速我国医疗设备国产化。

由于反应堆存在占地面积大, 运维成本高、潜在危险性大及安全隐患等因素, 限制了反应堆 BNCT 的临床应用, 反应堆 BNCT 中子源逐渐退出历史舞台^[6]。随着加速器技术的进步, 可以通过射频直线加速、回旋加速和高压加速等方式提供安全可靠、使用灵活方便的中子。通过研究加速器加速粒子束轰击靶材料的反应有: $^7\text{Li}(\text{p}, \text{n})^7\text{Be}$ 、 $^{13}\text{C}(\text{p}, \text{n})^{14}\text{N}$ 、 $^3\text{T}(\text{d}, \text{n})^4\text{He}$ 、 $^9\text{Be}(\text{d}, \text{n})^{10}\text{B}$ 等。国内外多个组织机构都在推动 AB-BNCT 的研发及临床应用^[7,8]。

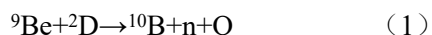
在稳定产生中子方面, 与 $^7\text{Li}(\text{p}, \text{n})^7\text{Be}$ 反应相比, $^9\text{Be}(\text{d}, \text{n})^{10}\text{B}$ 具有更大的优势。金属铍具有合适的热性能和机械性能, 铍的熔点和热导率分别为 1287°C 和 $190\text{W/m}\cdot\text{K}$, 而金属锂的熔点和热导率分别为 180°C 和 $84.7\text{W/m}\cdot\text{K}$ 。由 $^7\text{Li}(\text{p}, \text{n})^7\text{Be}$ 反应产生的中子作为源项, 需要考虑到锂靶的冷却问题、剩余核 ^7Be (半衰期为 53 天) 以及锂靶的辐照损伤问题。采用 $^9\text{Be}(\text{d}, \text{n})^{10}\text{B}$ 作为源项, 铍具有高熔点和高热导率, 有效的水冷却可以带走这些热量, 并且 ^{10}B 是稳定同位素, 没有残余的放射性。

本论文考虑铍替代锂作为紧凑型中子源靶材料, 并分析低能氘束轰击铍靶后中子的产额、能谱, 给出一种基于 $^9\text{Be}(\text{d}, \text{n})^{10}\text{B}$ 反应的 AB-BNCT 装置的 BSA 可行性设计方案。

1 材料与方法

1.1 D-Be 中子源

20 世纪末, 有学者提出了基于 ${}^9\text{Be}(\text{d}, \text{n}){}^{10}\text{B}$ 的中子源, 基于 AB-BNCT 产生治疗用中子束^[9], 其反应式为:



式中: $\text{Q}=4.36\text{ MeV}$ 。在较低的氘束能量下, 该反应也有较高的中子产额, 并且产生的中子能量较其他中子源更低 ($\leq 6\text{ MeV}$)。1.45 MeV 的氘束轰击 $9\text{ }\mu\text{m}$ 的薄铍靶, 在靶中损失约 504 keV 的能量^[10]。由于 Q 值为 4.36 MeV, 剩余核 ${}^{10}\text{B}$ 的第 6 能级 (表 1) 在约 1 MeV 的轰击能量下就优先于其他核被填充, 反应中释放的大部分能量被消耗在 ${}^{10}\text{B}$ 的激发中。通过采用薄靶将所有反应抑制在有效阈值以下, 大部分高能中子能被消除, 而剩下的几百 keV 就作为发射中子的动能, 导致发射的中子能量非常小^[11]。因此, 采用薄靶增加了低能中子产额, 软化中子谱, 降低了后续慢化的难度。

表 1 与 ${}^{10}\text{B}$ 每个能级相关的阈值能量
Table 1 Threshold energy associated to each of the accessible states of ${}^{10}\text{B}$

能级	能级能量 (keV)	阈值能量 (keV)
Energy level	Energy level energy	Threshold energy
基态		
1	718.380	-
2	1740.05	-
3	2154.27	-
4	3587.13	-
5	4774.0	504.9
6	5110.3	916.4
7	5163.9	982.0
8	5180	1004.2

1.2 蒙特卡罗模拟方法

GEANT4 (GEometry ANd Tracking) 是由欧洲核子中心 (CERN) 于 1994 年开发, 是一个以 C++ 为底层语言, 以蒙特卡罗方法为基础的模拟粒子在材料中的输运过程的工具, 它能够涉及各种各样的微观粒子 (电子、中子、质子、X 射线、各种重离子以及可衰变核素的辐射粒子), 主要在核物理、加速器物理、核医学等领域中使用。本论文使用 GEANT4 中相应的物理模型模拟 D-Be 反应。

FLUKA (FLUktuierende KAskade) 是一个通用的蒙卡粒子输运工具, 可以模拟约 60 种不同的粒子, 包括从 1 keV 到几千 TeV 的光子和电子、任意能量的 μ 介子、20 TeV 以下的强子以及对应的反粒子、从热能区往上的中子和重离子等。应用范围包括: 剂量学、探测器设计、宇宙射线、放射治疗等。本论文使用 FLUKA 对整个束流整形体 (Beam Shaping Assembly, BSA) 进行设计和优化。

2 中子源产生

GEANT4 (GEometry ANd Tracking) 是由欧洲核子中心 (CERN) 于 1994 年开发, 是一个以 C++ 为底层语言, 氘束在铍靶中, 主要有以下四种反应: 复合核反应、氘核碎裂反应、破裂反应以及敲出反应^[12]。本模拟中铍靶的厚度为 $9\text{ }\mu\text{m}$, 由于铍靶很薄, 目前没有完善的评价核数据库对该反应进行研究, 需要使用 GEANT4 中相应的物理模型计算中子产额, 参考 M.E.Capoulat 等人^[13]的文献中的数据, 其中子产额为 $1.62\times 10^{11}\text{ n}\cdot\text{mC}^{-1}$ 。1.45 MeV 氘束轰击薄铍靶得到的中子谱, 如图 1 所示, 其产额为 $1.82\times 10^{11}\text{ n}\cdot\text{mC}^{-1}$ 。结果表明, 计算结果整体上符合参考数据。

获取该中子谱中子动量、位置、发射方向等信息, 作为后续蒙特卡罗程序 FLUKA 源文件的输入。

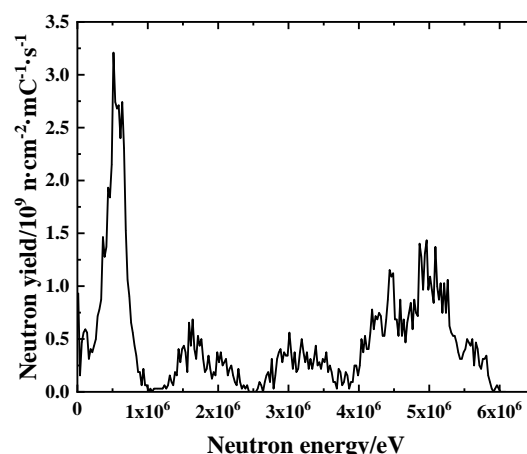


图 1 1.45 MeV 氘束轰击薄靶模拟 ${}^9\text{Be}(\text{d}, \text{n}){}^{10}\text{B}$ 反应的中子谱

Fig.1 Neutron spectrum of simulated ${}^9\text{Be}(\text{d}, \text{n}){}^{10}\text{B}$ reaction with 1.45 MeV deuterium beam bombard on a thin target

3 束流整形体 BSA

BNCT 装置设计工作的核心内容之一是对

BSA 进行设计和优化,其作用是将快中子慢化至可用于治疗的固定能量范围的超热中子。在 BSA 优化中,每个组件都应该根据上游组件的中子输出进行优化。经慢化后 BSA 出口处中子束流的相关参数应满足国际原子能机构 (International Atomic Energy Agency, IAEA) 所给出的建议值^[14],如表 2 所示。

表 2 IAEA-TECDOC-1223 推荐的治疗用中子束指标
Table 2 Targeted values of therapeutic neutron beam recommended by IAEA-TECDOC-1223

BNCT 端口参数	建议值
BNCT port parameters	Recommended values
$\Phi_{\text{epi}} (\text{n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1})$	$\sim 10^9$
$\dot{D}_{\text{fast}} / \Phi_{\text{epi}} (\text{Gy} \cdot \text{cm}^2)$	$< 2 \times 10^{-13}$
$\dot{D}_{\gamma} / \Phi_{\text{epi}} (\text{Gy} \cdot \text{cm}^2)$	$< 2 \times 10^{-13}$
$\Phi_{\text{epi}} / \Phi_{\text{fast}}$	> 20
$\Phi_{\text{epi}} / \Phi_{\text{th}}$	> 20
J / Φ	~ 0.7
快中子能区 E/eV	$E > 10000$
Fast energy group	
超热中子能区 E/eV	$0.5 < E < 10000$
Epithermal energy group	
热中子能区 E/eV	$E < 0.5$
Thermal energy group	

其中,快中子成分 $\dot{D}_{\text{fast}} / \Phi_{\text{epi}}$ 和 γ 成分 $\dot{D}_{\gamma} / \Phi_{\text{epi}}$ 分别为快中子和 γ 的吸收剂量率与超热中子通量的比值; $\Phi_{\text{epi}} / \Phi_{\text{th}}$ 为超热中子与快中子通量的比值; $\Phi_{\text{epi}} / \Phi_{\text{fast}}$ 为超热中子与快中子通量的比值; $\Phi_{\text{fast}} / \Phi_{\text{total}}$ 为快中子与总中子通量的比值; 流量通量比值 J / Φ 表征了中子束的前向性。

3.1 BSA 结构

设定一个基准 BSA 模型,整体为圆柱体结构,如图 2 所示,从左至右依次为:反射层、氦束通道、靶体、冷却体、慢化层、准直体、热中子吸收层。氦束从左侧注入,靶材料铍层沉积在相对较薄的层(由钒、铌等支撑材料)上,以避免氢脆。本论文中不考虑这些背衬材料,因为它们对模拟的结果几乎没有影响。铍靶后端为铜腔,厚度为 1.5 cm,铜腔中含水,有效的水冷却能够安全地带走束流沉积的热量^[15]。准直孔的出口半径为 7.5 cm。根据 D-Be 反应中子谱具体信息及基准模型,使用 FLUKA 对整个 BSA 进行可行性方案设计。

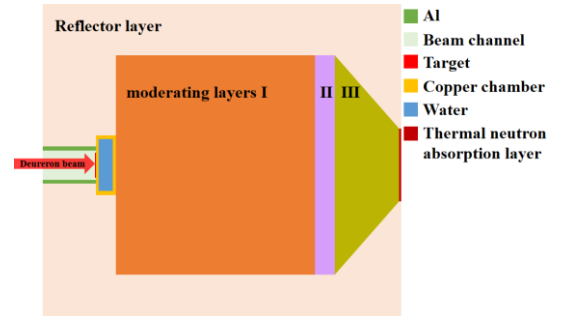


图 2 基准 BSA 模型

Fig.2 Basis BSA model

3.2 慢化层

慢化层的主要作用是将快中子尽可能多地慢化成超热中子。慢化层材料应在超热中子区具有低散射截面,在快中子区具有高散射截面,并对超热中子的吸收截面应尽可能低^[16]。本论文采用多层慢化组合结构。由于含氟材料具备良好的慢化快中子性能,选择 PbF_2 等含重元素的材料作为第一层慢化材料, MgF_2 等含较轻元素的材料作为第二层慢化材料^[17]。

参考众多学者^[16-18]对慢化组合层的选择及模拟,将慢化层组合结构总长设置为 50 cm。第一层慢化层厚度变化区间为 15-45 cm,步长设为 5 cm,半径为 25 cm。通过对不同厚度慢化材料组合进行模拟,得到候选材料与厚度的最佳组合。计算结果如图 3、图 4、图 5 所示,分别给出了不同组合下的中子慢化效果。

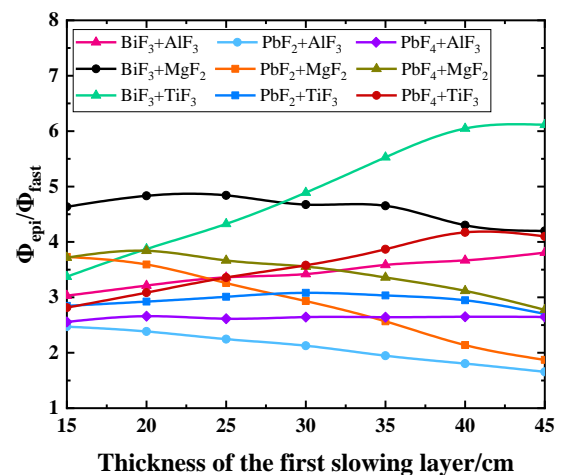


图 3 不同慢化层组合下 $\Phi_{\text{epi}} / \Phi_{\text{fast}}$ 随厚度变化关系

Fig.3 Relationship between the variation of $\Phi_{\text{epi}} / \Phi_{\text{fast}}$ with thickness under different combinations of slowing layers

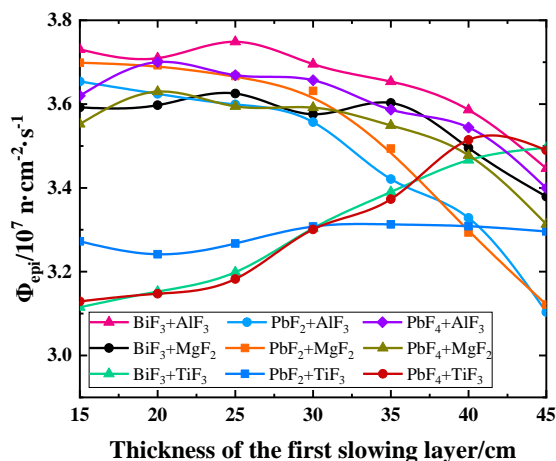

 图 4 不同慢化层组合下 Φ_{epi} 随厚度变化关系

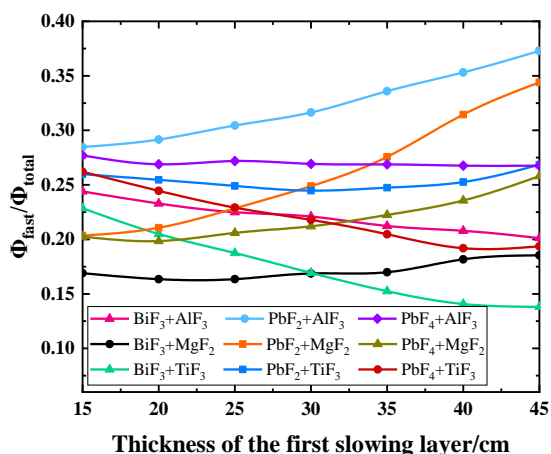
 Fig.4 Relationship between the variation of Φ_{epi} with thickness under different combinations of slowing layers

 图 5 不同慢化层组合下 $\Phi_{\text{fast}}/\Phi_{\text{total}}$ 随厚度变化关系

 Fig.5 Relationship between the variation of $\Phi_{\text{fast}}/\Phi_{\text{total}}$ with thickness under different combinations of slowing layers

由图 3 和图 5 可知, BiF_3 和 MgF_2 的组合层的 $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$ 较其他组合层高, $\Phi_{\text{fast}}/\Phi_{\text{total}}$ 较其他组合层低。第一层慢化层厚度为 45 cm 时, BiF_3 和 TiF_3 组合层 $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$ 比值达最大, $\Phi_{\text{fast}}/\Phi_{\text{total}}$ 达最低, 并由图 4 可知, Φ_{epi} 随 BiF_3 厚度的增加而增大。选择 25 cm 厚的 BiF_3 和 25 cm 厚的 MgF_2 与 45 cm 厚的 BiF_3 和 5 cm 厚的 TiF_3 作为候选慢化层组合方案。中子经过这两种慢化层组合后的能谱如图 6 所示。

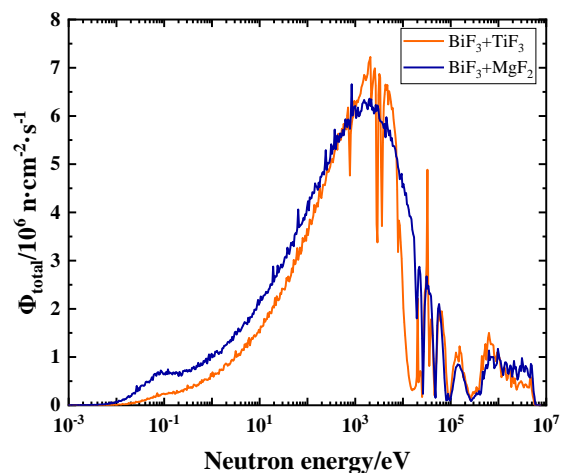


图 6 中子经过两种慢化层组合后的能谱

Fig.6 Energy spectrum of neutrons after passing through two types of slowing layers

由图 6 可知, 采用厚度为 45 cm 的 BiF_3 和 5 cm 的 TiF_3 慢化组合层, 超热中子范围内的中子更加集中, 热中子通量更低。厚度为 25 cm 的 BiF_3 和 25 cm 的 MgF_2 组合层结构, 其热中子通量较高。BSA 设计目标其一就是得到很低的出口处热中子通量, 因此, 采用厚度为 45 cm 的 BiF_3 和 5 cm 的 TiF_3 作为慢化组合层。

3.3 反射层

反射层的主要作用减少中子泄漏, 最大化 BSA 出口处的中子通量。反射体为圆筒状, 包覆在中子源和慢化体外侧, 采用在超热中子能区具有高弹性散射截面和低吸收截面的铅、铋两种反射层材料, 针对不同厚度进行模拟。计算结果如图 7 和图 8 所示。

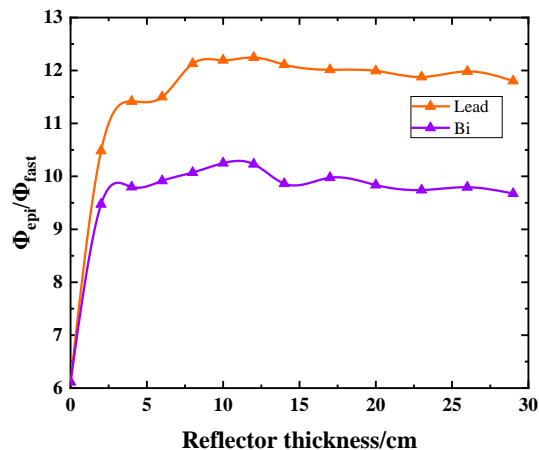

 图 7 铅、铋反射层下 $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$ 随厚度变化关系

 Fig.7 Relationship between the variation of $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$ with thickness under lead and bismuth

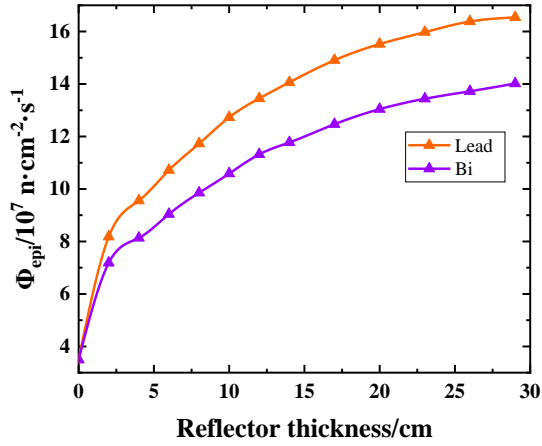


图 8 铅、铋反射层下 Φ_{epi} 随厚度变化关系

Fig.8 Relationship between the variation of Φ_{epi} with thickness under lead and bismuth

由图 7 和图 8 可知,增加一定的反射层厚度,能够使得 $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$ 比值、 Φ_{epi} 明显增大,且铅的效果要优于铋。本论文研究适合安装在医院的紧凑型快中子源装置,适当的选择反射层厚度,可以缩小整体装置的尺寸。因此,本论文选择厚度为 12 cm 的铅作为反射层。

3.4 补充慢化层及准直器

由于经过慢化层组合结构的中子并未完全慢化至所需超热中子能量范围,需要通过补充慢化层进一步慢化。采用含较轻元素的 Al_2O_3 、 AlF_3 、 MgO 这 3 种材料针对不同的厚度进行模拟计算。补充慢化层为圆柱结构,位于慢化层组合下端,半径与慢化层组合保持一致,其厚度变化区间为 5-23 cm,步长设为 3 cm,计算结果如图 9、图 10 所示。

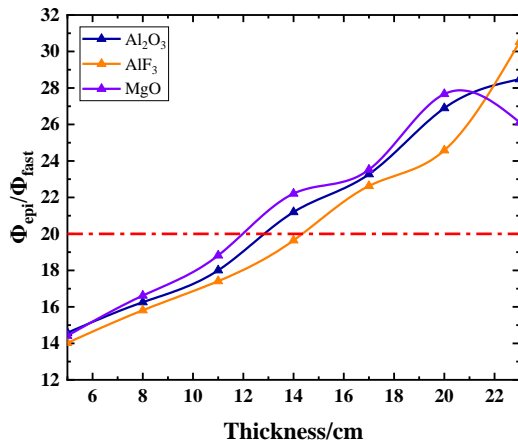


图 9 不同慢化层下 $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$ 随厚度变化关系

Fig.9 Relationship between the variation of $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$ with thickness under different slowing layers

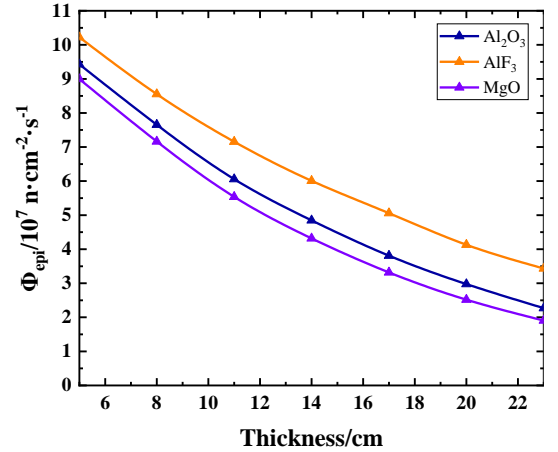


图 10 不同慢化层下 Φ_{epi} 随厚度变化关系

Fig.10 Relationship between the variation of Φ_{epi} with thickness under different slowing layers

由图 9 可看出,随着三种补充慢化层材料厚度的增加, $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$ 比值也随之增大,厚度为 14 cm 左右时,三种材料的 $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$ 比值大于 20。由图 10 可以看出,随着三种补充慢化层材料厚度的增加,超热中子通量 Φ_{epi} 随之降低。虽然 MgO 材料能够在更低的厚度下达到 $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$ 比值要求,但是其 Φ_{epi} 值始终比 AlF_3 的 Φ_{epi} 值低。根据 BSA 设计要求,在满足 $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$ 要求的同时,选择超热中子通量更大的补充慢化层材料 AlF_3 ,其厚度为 17 cm。

因束流整形体 BSA 出口处的中子较为发散,准直体一般采用锥形孔道结构以引导中子束流至患者肿瘤部位进行照射治疗。将厚度为 17 cm 的 AlF_3 代入准直器锥形结构中,其内径为 25 cm,外径设置为 7.5 cm。计算结果: $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$ 比值为 27.18。由图 10 可知,可以设置更小厚度的补充慢化层材料以增大超热中子通量。因此,选择补充慢化层材料 AlF_3 ,其厚度为 11 cm。计算结果: $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$ 比值为 21.79,满足要求。

3.5 热中子吸收层

经过上述慢化层组合及补充慢化层的方案下,不可避免的会产生热中子, $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{th}}$ 比值为 9.19,不满足 IAEA 最小限值 20 的要求。热中子会对人体皮肤和表层组织造成伤害,因此在超热中子束照射之前,需添加一层热中子吸收层以降低热中子比例。该材料应对能量小于 0.5 eV 的热中子具有很大的吸收截面,在中能区和高能区具有很低的散射截面和吸收截面。

常见的热中子吸收材料为 ^6Li 和 ^{113}Cd , ^6Li 对

中子的吸收截面为 940 b, 而且 ${}^6\text{Li}(\text{n},\alpha)$ 反应吸收中子产生的 γ 污染很少, 不会造成后续处理难度。 ${}^{113}\text{Cd}$ 对中子的吸收截面为 2100 b, 中能区平均热中子吸收截面为 8 b, 高能区平均热中子吸收截面为 0.05 b, 其自然丰度为 12.2%。

采用 LiF、天然镉这两种材料针对不同的厚度进行模拟计算。热中子吸收层为圆饼状薄层结构, 紧靠补充慢化层, 热中子吸收层厚度变化区间为 0.01-0.15 cm, 步长设为 0.01 cm, 计算结果如图 11 所示。

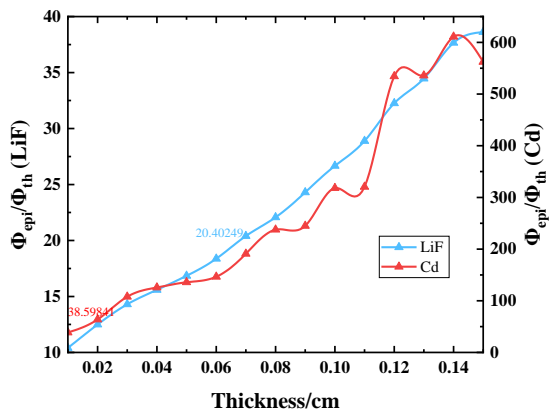


图 11 不同热中子吸收层下 $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{th}}$ 随厚度的变化关系

Fig.11 Relationship between the variation of $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{th}}$ with thickness under different thermal neutron absorption layers

由图 11 可以看出, LiF 材料的 $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{th}}$ 比值随热中子吸收层厚度的增加而缓慢增加, 变化幅度较小。LiF 厚度为 0.07 cm 时, $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{th}}$ 为 20.4。Cd 材料的 $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{th}}$ 比值随热中子吸收层厚度的增加而剧烈增加, 初始厚度为 0.01 cm 时 $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{th}}$ 为 39.03, 厚度为 0.14 cm 时 $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{th}}$ 为 610.9, 升高了约 1482%, 吸收热中子效果十分显著。因此, 在本论文中, 使用 0.01 cm 的镉热中子吸收层就可达到要求, $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{th}}$ 比值为 39.03。此时, BSA 出口处中子束流的 γ 成分 $\dot{D}_{\gamma}/\Phi_{\text{epi}}$ 为 $1.24 \times 10^{-15} \text{ Gy} \cdot \text{cm}^2$, 快中子成分 $\dot{D}_{\text{fast}}/\Phi_{\text{epi}}$ 为 $3.99 \times 10^{-14} \text{ Gy} \cdot \text{cm}^2$, 小于 IAEA 最大限值 $2 \times 10^{-13} \text{ Gy} \cdot \text{cm}^2$, 满足要求。

4 结论

本论文采用氘束轰击薄铍靶, 由 ${}^9\text{Be}(\text{d},\text{n}){}^{10}\text{B}$ 反应产生的中子作为源项, 产额达 $1.82 \times 10^{11} \text{ n} \cdot \text{mC}^{-1}$ 。经对束流整形体进行设计和优化可得 BSA 优化设计方案: 采用 45 cm 厚的 BiF_3 和 5 cm 厚的 TiF_3 组合慢化层, 12 cm 厚的 Pb 反射层, 11 cm 厚的 Al_2O_3 补充慢化层, 以及 0.1 mm 厚的 Cd 热中子吸收层, 空气端出口参数 Φ_{epi} 为 $1.05 \times 10^8 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{th}}$ 为 39.03, $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$ 为 21.82, $\dot{D}_{\gamma}/\Phi_{\text{epi}}$ 为 $1.24 \times 10^{-15} \text{ Gy} \cdot \text{cm}^2$, $\dot{D}_{\text{fast}}/\Phi_{\text{epi}}$ 为 $3.99 \times 10^{-14} \text{ Gy} \cdot \text{cm}^2$, J/Φ 约为 0.6。

经该设计方案下 BSA 整形慢化后的超热中子束流能谱如图 12 所示, 超热中子束流的参数值和 IAEA 建议值以及世界上其它超热中子 BSA 设计的对比如表 3 所示。在保证出口处的 γ 成分、快中子成分、 $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{th}}$ 以及 $\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$ 符合 IAEA 所推荐的控制值的前提下, 当电流大于 0.28A 可满足 $\Phi_{\text{epi}} > 1 \times 10^9 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 。本研究为 D-Be 中子源中子的慢化整形提供了数据参考, 为 D-Be 源的进一步优化研究提供支持。

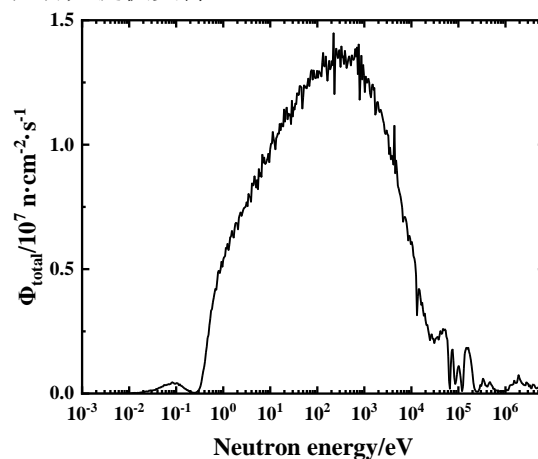


图 12 经慢化后的超热中子束流能谱

Fig.12 Epithermal neutron beam energy spectrum after moderation

表 3 最终 BSA 出口处中子束流相关参数计算值和其它设计方案对比

Table 3 Comparison between the calculated values of neutron beam parameters at the final BSA outlet and other design schemes

BNCT 端口参数 BNCT port parameters	$\Phi_{\text{epi}} (\times 10^9 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1})$	$\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$	$\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{th}}$	$\dot{D}_{\text{fast}}/\Phi_{\text{epi}} (\times 10^{-13} \text{ Gy} \cdot \text{cm}^2)$	$\dot{D}_{\gamma}/\Phi_{\text{epi}} (\times 10^{-13} \text{ Gy} \cdot \text{cm}^2)$	J/Φ
建议值 Recommended value	~1	>20	>20	<2	<2	~0.7
本论文 This work	0.11	21.82	39.03	0.0124	0.399	0.6
Cerullo 等 ^[19]	0.66	23.2	133	3.19	1.1	0.58
Montagnini 等 ^[20]	1.23	35.0	103.1	1.7	1.7	0.61

表 3 最终 BSA 出口处中子束流相关参数计算值和其它设计方案对比 (续表)
Table 3 Comparison between the calculated values of neutron beam parameters at the final BSA outlet and other design schemes(Continued table)

BNCT 端口参数 BNCT port parameters	$\Phi_{\text{epi}}(\times 10^9 \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1})$	$\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{fast}}$	$\Phi_{\text{epi}}/\Phi_{\text{th}}$	$\dot{D}_{\text{fast}}/\Phi_{\text{epi}}$ ($\times 10^{-13} \text{ Gy}\cdot\text{cm}^2$)	$\dot{D}_{\gamma}/\Phi_{\text{epi}}$ ($\times 10^{-13} \text{ Gy}\cdot\text{cm}^2$)	J/ Φ
Fantidis 等 ^[21]	1.096	-	178.6	1.4	1.4	-
ZHU Yinan 等 ^[17]	1.91	21.1	114	0.99	1.79	0.96

作者贡献声明 王佳负责模型构建与仿真建模、文章起草与修订;刘义保负责研究设计、理论指导、审阅文章内容与修订。魏强林负责研究设计、理论指导;张子雄、李凯旋、潘炆煊负责内容修订。

参考文献

1 LUDEWIGT B A, BLEUEL D L. Clinical requirements and accelerator concepts for BNCT[R]. Accelerator and Fusion Research Division,LBNL-40262Rev UC-406,2,US:Lawrence Berkeley National Laboratory. 1997.

2 FARR L E, SWEET W H, LOCKSLEY H B, et al. Neutron capture therapy of gliomas using boron[J]. Transactions of the American Neurological Association, 1954, 13(79th Meeting): 110-113. PMID: 13238328.

3 SNYDER H R, REEDY A J, LENNARZ Wm J. Synthesis of Aromatic Boronic Acids. Aldehyde Boronic Acids and a Boronic Acid Analog of Tyrosine ¹[J/OL]. Journal of the American Chemical Society, 1958, 80(4): 835-838. DOI:10.1021/ja01537a021.

4 MISHIMA Y, ICHIHASHI M, HATTA S, et al. First human clinical trial of melanoma neutron capture. Diagnosis and therapy[J]. Strahlentherapie Und Onkologie: Organ Der Deutschen Rontgengesellschaft ... [et Al], 1989, 165(2-3): 251-254. PMID: 2494743.

5 YONG Z, SONG Z, ZHOU Y, et al. Boron neutron capture therapy for malignant melanoma: first clinical case report in China[J/OL]. Chinese Journal of Cancer Research, 2016, 28(6): 634-640. DOI:10.21147/j.issn.1000-9604.2016.06.10.

6 MENG P, HE G Z, ZHANG Q W, et al. Study of neutron production and moderation for sulfur neutron capture therapy[J/OL]. Nuclear Science and Techniques, 2019, 30. DOI:10.1007/s41365-018-0529-3.

7 KIYANAGI Y, SAKURAI Y, KUMADA H, et al. Status of accelerator-based BNCT projects worldwide[C/OL]//AIP Conference Proceedings. AIP

Conf. Proc. 2160, 050012 (2019).

8 ALTIERI S, PROTTI N. A brief review on reactor-based neutron sources for boron neutron capture therapy[J/OL]. Therapeutic Radiology and Oncology, 2018, 2: 47-47. DOI:10.21037/tro.2018.10.08.

9 COLONNA N, BEAULIEU L, PHAIR L, et al. Measurements of low-energy (d,n) reactions for BNCT. Boron Neutron Capture Therapy[J/OL]. Medical Physics, 1999, 26(5): 793-798. DOI:10.1118/1.598599.

10 CAPOULAT M E, HERRERA M S, MINSKY D M, et al. ⁹Be(d,n)¹⁰B-based neutron sources for BNCT[J/OL]. Applied Radiation and Isotopes, 2014, 88: 190-194. DOI:10.1016/j.apradiso.2013.11.037.

11 CAPOULAT M E, SAUZET N, VALDA A A, et al. Neutron spectrometry of the ⁹Be(d (1.45 MeV), n)¹⁰B reaction for accelerator-based BNCT[J/OL]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2019, 445: 57-62. DOI:10.1016/j.nimb.2019.03.005.

12 张雅玲. ⁹Be(d,n)和 ⁹Be(p,n)反应加速器中子源中子学特性研究[D/OL]. 兰州: 兰州大学, 2018. Zhang Yaling. Research on neutronics characteristics of ⁹Be(d,n) and ⁹Be(p,n) reaction accelerator neutron sources[D/OL]. Lanzhou: Lanzhou University, 2018.

13 CAPOULAT M E, MINSKY D M, KREINER A J. Computational assessment of deep-seated tumor treatment capability of the ⁹Be(d,n)¹⁰B reaction for accelerator-based Boron Neutron Capture Therapy (AB-BNCT)[J/OL]. Physica Medica, 2014, 30(2): 133-146. DOI:10.1016/j.ejmp.2013.07.001.

14 AGENCY I A E. Current Status of Neutron Capture Therapy: IAEA-TECDOC-1223[R]//Current Status of Neutron Capture Therapy. International Atomic Energy Agency, 2001: 29-31.

15 NAKAYAMA S. Simulated performance evaluation of d-Be compact fast neutron source[J/OL]. Journal of Nuclear Science and Technology, 2023: 1-7. DOI:10.1080/00223131.2023.2225498.

16 王勇泉. 加速器硼中子俘获治疗装置束流整形体的

- 设计及其临床剂量学参数研究[D/OL]. 兰州: 兰州大学, 2023.
- Wang Yongquan. Design of Beam Shaping Assembly for accelerator boron neutron capture therapy device and study of clinical dosimetric parameters[D/OL]. Lanzhou: Lanzhou University, 2023.
- 17 朱益楠, 林作康, 卢林远, 等. 基于氘氚中子源硼中子俘获治疗的中子慢化整形研究[J]. 核技术, 2022, 45(1): 29-36. DOI:10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.010202.
- Zhu Y-N, Lin Z-K, Lu L-Y, et al. Design of beam shaping assembly for boron neutron capture therapy based on D-T neutron source[J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 2022, 45(1): 29-36. DOI:10.11889/j.0253-3219.2022.hjs.45.010202.
- 18 田永顺, 胡志良, 童剑飞, 等. 基于 3.5 MeV 射频四极质子加速器硼中子俘获治疗装置的束流整形设计[J/OL]. 物理学报, 2019, 67(14): 142801-142801. DOI:10.7498/aps.67.20180380.
- Tian Y-S, Hu Z-L, Tong J-F, et al. Design of beam shaping assembly based on 3.5 MeV radio-frequency quadrupole proton accelerator for boron neutron capture therapy[J/OL]. Acta Physica Sinica, 2019, 67(14): 142801-142801. DOI:10.7498/aps.67.20180380.
- 19 CERULLO N, ESPOSITO J, LEUNG K N, et al. An irradiation facility for Boron Neutron Capture Therapy application based on a radio frequency driven D-T neutron source and a new beam shaping assembly[J/OL]. Review of Scientific Instruments, 2002, 73(10): 3614-3618. DOI:10.1063/1.1505128.
- 20 MONTAGNINI B, CERULLO N, ESPOSITO J, et al. Spectrum Shaping of accelerator based neutron beams for BNCT[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 2002, 476: 90. DOI:10.1016/S0168-9002(01)01398-5.
- 21 FANTIDIS J G. Beam shaping assembly study for BNCT facility based on a 2.5 MeV proton accelerator on Li target[J/OL]. Journal of Theoretical and Applied Physics, 2018, 12. DOI:10.1007/s40094-018-0312-1.